# This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

# **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

## 1 ATENT COOPERATION TREALY

N	From the INTERNATIONAL BUREAU				
<sup>™</sup> PCT	То:				
NOTIFICATION OF ELECTION	Assistant Commissioner for Patents United States Patent and Trademark				
(PCT Rule 61.2)	Office				
	Box PCT Washington, D.C.20231				
	ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE				
Date of mailing (day/month/year)	in its capacity as elected Office				
26 November 1999 (26.11.99)					
International application No. PCT/EP99/01537	Applicant's or agent's file reference  Le A 32 873-PC				
International filing date (day/month/year) 10 March 1999 (10.03.99)	Priority date (day/month/year) 18 March 1998 (18.03.98)				
Applicant					
LINDE, Günter et al					
The designated Office is hereby notified of its election made:					
X in the demand filed with the International Preliminary					
28 September	1999 (28.09.99)				
in a notice effecting later election filed with the Intern	ational Bureau on:				
_					
2. The election X was					
was not					
made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).					

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Jean-Marie McAdams

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

# PCT

#### **ANTRAG**

Der Unterzeichnete beantragt, daß die vorliegende internationale Anmeldung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des

Vom Anmeldear	nt auszufüllen
Internationales Aktenzeichen	NEUAHMELDUNG
Internationales Anmeldedatum	1 2.03.99
	A commonwater
Name des Anmeldeamts und "PCT	International Application"
Altegraighen das Anneldan edan	A

Patentwesens behandelt wird. (max. 12 Zeichen) Le A 32 873-PC PΒ BEZEICHNUNG DER ERFINDUNG Feld Nr. I Rußgranulate Feld Nr. II ANMELDER Name und Anschrist: (Familienname, Vorname: bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrist sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrist angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.) Diese Person ist gleichzeitig Erfinder Telefonnr.: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 0214 30 71166 51368 Leverkusen DE 0214 30 34 82 Femschreibnr.: 85 101-265byd Sitz oder Wohnsitz (Staat): Stuatsangehörigkeit (Staat): DE DE Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika alle Bestimnur die Vereinigten Staaten von Amerika die im Zusatzfeld angegebenen Staaten für folgende Staaten: mungsstaaten Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.) Diese Person ist: nur Anmelder Linde, Günter Anmelder und Erfinder Deswatinesstr. 95 D 47800 Krefeld nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden DE Angaben nicht nötig.) Sitz oder Wohnsitz (Staat): Staatsangehörigkeit (Staat): DΕ DE Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika alle Bestimnur die Vereinigten die im Zusatzfeld für folgende Staaten: angegebenen Staaten mungsstaaten Staaten von Amerika Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem Fortsetzungsblatt angegeben. Feld Nr. IV ANWALT ODER GEMEINSAMER VERTRETER; ODER ZUSTELLANSCHRIFT gemeinsamer Die folgende Person wird hiermit bestellt/ist bestellt worden, um für den (die) Anmelder Anwalt vor den zuständigen internationalen Behörden in folgender Eigenschaft zu handeln als: Vertreter (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.) Name und Anschrift: Telefonnr.: 0214 30 71166 Telefaxor.: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 0214 30 34 82 51368 Leverkusen, DE Fernschreibnr.: 85 101-265byd Zustellanschrift: Dieses Kästchen ist anzukreuzen, wenn kein Anwalt oder gemeinsamer Vertreter bestellt ist und statt dessen im obigen Feld eine spezielle Zustellanschrift angegeben ist.

Blatt Nr. . . 2. . . .

Fortsetzung von Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER			
Wird keines der folgenden Felder benutzt, so sollt	e dieses Blatt dem Ant	rag nicht beigefügt werden.	
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollstö Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmeld Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)  Hempelmann, Uwe Kaarster Str. 124 D 40670 Meerbusch DE	ändige amtliche Bezeichnun Der in diesem Feld in di lers, sofern nachstehend ke	Diese Person ist:  nur Anmelder  Anmelder und Erfinder  nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)	
Staatsangehörigkeit (Staat): DE	Sitz oder Wohnsitz ( DE	Staat):	
Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungsstaten alle Bestimmungsstaten der Vereinigten Staten:		nur die Vereinigten die im Zusatzfeld Staaten von Amerika angegebenen Staaten	
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollste Bei der Anschrift sind die Postleitahl und der Name des Staats anzugeben. Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelo Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)  Eitel, Manfred von Behringstr. 77 D 47906 Kempen DE	Der in diesem Feld in d	ter Diana Dagga in	
Staatsangehörigkeit (Staat):	Sitz oder Wohnsitz	(Staat):	
DE  Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungssteaten alle Bestimmungssteaten der Vereinigten Sta	taaten mit Ausnahme	nur die Vereinigten die im Zusatzfeld angegebenen Staaten	
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname: bei juristischen Personen volls Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anme Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)	i. Der in diesem Feld in	der Diasa Parson ist:	
Stuatsangehörigkeit (Staat):	Sitz oder Wohnsitz	(Staat):	
	staaten mit Ausnahme tuaten von Amerika	nur die Vereinigten die im Zusatzfeld Staaten von Amerika angegebenen Staaten	
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname: bei juristischen Personen voll: Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anme Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)	<ol> <li>Der in diesem Feld in</li> </ol>	der Disca Parson icu	
Staatsangehörigkeit (Staat):	Sitz oder Wohnsitz	z (Staat):	
	sstaaten mit Ausnahme Staaten von Amerika	nur die Vereinigten die im Zusatzfeld Staaten von Amerika angegebenen Staaten	
Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf e	inem zusätzlichen For	rsetzungsblatt angegeben.	

.}		Blatt Nr3					
Feld N	r. V	BESTIMMUNG VON STAATEN					
muß anz	ekreust	werden):	ramen (	bitte die	entsprechenden Kästchen antreuzen; wenigstens ein Kästchen		
Region	ales F	Patent		10.			
		ARIPO-Patent: GH Ghana, GM Gambia, KE Kenia, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SZ Swasiland, UG Uganda, ZW Simbabwe und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Harare-Protokolls und des PCT ist					
⋈		Moldau, RU Russische Föderation, TJ Tadschikistar Eurasischen Patentübereinkommens und des PCT is	a, TM	Turkn	arus, KG Kirgisistan, KZ Kasachstan, MD Republik nenistan und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des		
Ø	EP	DE Deutschland, DK Dänemark, ES Spanien, FI Finnl IE Irland, IT Italien, LU Luxemburg, MC Monaco. N	land, F L Nic	'R Fran derlan	und LI Schweiz und Liechtenstein, CY Zypern, ikreich, GB Vereinigtes Königreich, GR Griechenland, de, PT Portugal, SE Schweden und jeder weitere Staat,		
· 🖾	OA	der Vertragsstaat des Europäischen Patentübereinkommens und des PCT ist  OAPI-Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Zentralafrikanische Republik, CG Kongo, CI Côte d'Ivoire, CM Kamerun, GA Gabun, GN Guinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauretanien, NE Niger, SN Senegal, TD Tschad, TG Togo und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat der OAPI und des PCT ist Ifalls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Verfahren gewünscht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben)					
Nation	ales 1	Patent (falls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Vi					
$\boxtimes$		Albanien	ĺ⊠.		Lesotho		
123	AM	Armenien	$\boxtimes$		Litauen		
⋈	AΤ	Österreich	$\boxtimes$	LU	Luxemburg		
$\boxtimes$	ΑU	Australien	$\boxtimes$	LV	Lettland		
$\boxtimes$	ΑZ	Aserbaidschan	$\Sigma$	MD	Republik Moldau		
图	$\mathbf{B}\mathbf{A}$	Bosnien-Herzegowina	$\boxtimes$	ИC	Madagaskar		
Ø	вв	Barbados	$\boxtimes$	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik		
Ø		Bulgarien			Mazedonien		
<b>⊠</b>		Brasilien	128		Mongolei		
$\boxtimes$	BY		∑i ⊠i		Malawi		
Ø		Kanada	Ø		Mexiko		
<b>⊠</b>		und L1 Schweiz und Liechtenstein	<b>8</b> 1		Nonvegen		
<b>⊠</b>		China	X		Neuseeland		
		Kuba			Polen		
<b>⊠</b>		Tschechische Republik	( <u>⊠</u>		Portugal		
<b>8</b>		Dänemark	[⊠ [⊠				
Ø		Estland	$\boxtimes$	SD	Russische Föderation		
$\boxtimes$	ES	Spanien	×	SE			
$\boxtimes$	F١	Finnland	<u>×</u>	SG			
<b>⊠</b>	GB	Vereinigtes Königreich	$\boxtimes$	SI	Slowenien		
×	GD	Grenada	×	SK	Slowakei		
$\boxtimes$	GE	Georgien	X		Sierra Leone		
$\boxtimes$		Ghana	$\boxtimes$	TJ	Tadschikistan		
	G.S	1 Gambia	$\boxtimes$	TM	Turkmenistan		
⊠	HR	Kroatien	$\boxtimes$		Türkei		
$\boxtimes$	ΗU	Ungarm	$\boxtimes$	TT	Trinidad und Tobago		
EQ	ID	Indonesien		UA	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
区	ΙL	Israel	IX	UG	Uganda		
	-1.8	Indien	$\boxtimes$		Vereinigte Staaten von Amerika		
	is	lsland					
	JP	Japan	$\boxtimes$	UΖ	Usbekistan		
	KE	Kenia		VN	Vietnam		
	KC	C Kirgisistan	$\boxtimes$	ΥU	Jugoslawien		
	KF	P Demokratische Volksrepublik Korea	$\boxtimes$	Z۱۱	Simbabwe		
ì			Κä	stchen	für die Bestimmung von Staaten (für die Zwecke eines		
	KF	Republik Korea	ກລເ	ionale	n Patents), die dem PCT nach der Veröffentlichung		
	K7	Kasachstan	die	ses Fo	omblaus beigetreten sind: d alle diejenigen Länder, die		
123		Saint Lucia	Œ	a.m	Anmeldetag dem PCT beigetrete		
	LH	Sri Lanka			nd		
	LF	R Liberia	$\overline{\Box}$				
Er	kläru	ng bzgl. vorsorglicher Bestimmungen: Zuchieh	711 d		n genannten Bestimmungen nimmt der Anmelder nach		
Re	gel 4.	9 Absatz b auch alle anderen nach dem PCT zuläss	igen B	estim	nungen vor mit Ausnahme der im Zusatzfeld genannten		

Erklärung bzgl. vorsorglicher Bestimmungen: Zusätzlich zu den oben genannten Bestimmungen nimmt der Anmelder nach Regel 4.9 Absatz b auch alle anderen nach dem PCT zulässigen Bestimmungen vor mit Ausnahme der im Zusatzfeld genannten Bestimmungen, die von dieser Erklärung ausgenommen sind. Der Anmelder erklärt, daß diese zusätzlichen Bestimmungen unter dem Vorbehalt einer Bestätigung stehen und jede zusätzliche Bestimmung, die vor Ablauf von 15 Monaten ab dem Prioritätsdatum nicht bestätigt wurde, nach Ablauf dieser Frist als vom Anmelder zurückgenommen gilt. (Die Bestätigung einer Bestimmung erfolgt durch die Einreichung einer Mitteilung, in der diese Bestimmung angegeben wird, und die Zahlung der Bestimmungs- und der Bestätigungsgebühr. Die Bestätigung muß beim Anmeldeamt innerhalb der Frist von 15 Monaten eingehen.)

	_	

Feld Nr. VI PRIORITÄTS	ANSPRUCH	□ W€	itere Prioritätsansprüche sind in	m Zusatzfeld angegeben.
Anmeldedatum	Aktenzeichen		lst die frühere Anmeldung	
der früheren Anmeldung (Tag/Monat/Jahr)	der früheren Anmeldu	nationale Anmeld	ung: regionale Anmeldung:* in	nternationale Anmeldung:
7 1 (1)		Staat	regionales Amt	Anmeldeamt
Zeile (1) (18.3.98)	19811553.9	DE		
18. März 1998	10011000.0		1 0 1 F	, E
Zeile (2)				5
			SEP 1 4	2000
Zeile (3)				
			CAT'S TRADE	. sek &
			HADE	Mh
Das Anmeldeamt wird erst	icht, eine beglaubigte Abs	chrift der oben in der (der	n) Zeile(n) üro zu übermitteln ( <i>nur fa!ls die</i> )	<del></del>
dem Amt eingereicht word	en 181(81nd), das für die Zi	vecke dieser international	en Anmeldung Anmeldeamt ist)	
* Falls es sich bei der früheren A Mitgliedstaat der Pariser Verband	nmeldung um eine ARIPO- sühereinkunft zum Schutz i	Anmeldung handelt, so muß Ies gewerblichen Eigentum	in dem Zusatzfeld mindestens ein S is ist und für den die frühere Anm	Staat angegeben werden, der
	ONALE RECHERCH	<del></del>		thang engerteen warue.
Wahl der internationalen Recherc			Ergebnisse einer früheren Recherc	the: Bezugnahme auf diese
(falls zwei oder mehr als zwei im behörden für die Ausführung der in	ternationale Recherchen-	frühere Recherche falls e. beantragt oder von ihr dure	ine frühere Recherche bei der interna	ttionalen Recherchenbehörde
zuständig sind, geben Sie die von Ihr der Zweibuchstaben-Code kann ben	nen gewählte Behörde an:	Datum (Tag/Monat/Jahr		Staat (oder regionales Ami)
ISA /	incoment,			, , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,
	ICTC FINESIONS	.000000 + 0110		
Feld Nr. VIII KONTROLL		<del> </del>		
Diese internationale Anmeldur die folgende Anzahl von Blät	toen:	iationalen Anmeidung I für die Gebührenberech	iegen die nachstehend angekreu	izten Unterlagen bei:
Antrag :	5 1 <del>-</del>		· ·	į
Beschreibung (ohne		nderte unterzeichnete V		
Sequenzprotokollteil) :	J. L. Kopi	ündung für das Fehlen e	nacht: Aktenzeichen (falls vorh	ianden):
Ansprüche :		itätsbeleg(e), in Feld N		
Zusammenfassung :		nde Zeilennummer gek		
Zeichnungen :	6. 🔲 Über	setzung der internationa	ilen Anmeldung in die folgende	Sprache:
Sequenzprotokollteil   der Beschreibung :	7. Geson	nderte Angaben zu hinter	egten Mikroorganismen oder ande	erem biologischen Material
	8. 🔲 Prote	koll der Nucleotid- und	Voder Aminosäureseguenzen in	computerlesbarer Form
Blattzahl insgesamt :	19 9. 🛛 Sons	tige (einzeln aufführen)	Druckschriftenbe 1 Abbuchungszuft	stellung
Abbildung der Zeichnungen, d mit der Zusammenfassung	ie	Sprache, in der die internationale Anmeldur	···	7-0 y
veröffentlicht werden soll (Nr.):		eingereicht wird:		
Feld Nr. IX UNTERSCHI				
aus dem Antrag ergibt, in wel	ien rerson ist neben aer Icher Eigenschaft die Pe	Ontersenrijt zu wiederni Prson unterzeichnet.	olen, und es ist anzugeber, sofer	n sich dies nicht eindeutig
BAYES AVETENS	50511501155			
BAYER AKTIENG	ESELLSCHAFT		Weitere Unter s. Blatt4 <sup>lol</sup>	rschriften
		0	s. Blatt4	.j(
or. Gaiser	\ \/	9/1/1/1	will	follow
I The gran	~~~	(IXXX)		
Dr. Gaiser √	Dr. 8	ckert		,
		om Anmeldeamt auszu	füllen	
1. Datum des tatsächlichen		om Anneideant auszu	renen	2. Zeichnungen
internationalen Anmeldun	g:			einge-
3. Geündertes Eingangsdatur	n aufgrund nachträglich	. jedoch		gangen:
fristgerecht eingegangene zur Vervollständigung die	ser internationalen Ann	mungen Jeldung:		nicht sie
4. Datum des fristgerechten E		en		nicht ein- gegangen:
Richtigstellungen nach Ar	tikel II(2) PCT:			
5. Internationale Recherchen	ibehörde ändig sind): ISA	/ 6.	Übermittlung des Recherche	
(falls zwei oder mehr zust	anaig sina): 15A	·	☐ Zahlung der Recherchengeb	ouhr autgeschoben
D		Internationalen Büro a	uszufüllen —————	
Datum des Eingangs des A beim Internationalen Büro:	Aktenexemplars			

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONAL

**GEBIET DES PATENTWESENS** 

# **PCT**

**WIPO** 

PCT

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktonzojoh	doo	A	·			- /	
Le A 32 8		Anmelders oder Anwalts C PB	WEITERES VORGI	EHEN		ung über die Übersendung des internati Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/4	
Internationa	eles Ak	tenzeichen	Internationales Anmelde	datum/Tag	g/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)	
PCT/EP9	9/015	537	10/03/1999			18/03/1998	
Internationa C09C1/6		entklassification (IPK) oder	nationale Klassifikation und	IPK			
Anmelder							
BAYER A	AKTIE	NGESELLSCHAFT e	t al.				
		nationale vorläufige Prü stellt und wird dem Anm				nale vorläufigen Prüfung beauftrag	jte
2. Diese	r BER	ICHT umfaßt insgesamt	4 Blätter einschließlich	n dieses	Deckblatts.		
u	nd/ode	er Zeichnungen, die geä	ndert wurden und diese	em Berici	ht zugrunde	tter mit Beschreibungen, Ansprüch liegen, und/oder Blätter mit vor die: t 607 der Verwaltungsrichtlinien zu	ser
Diese	Anlag	gen umfassen insgesam	t Blätter.				
3. Diese	r Berio	cht enthält Angaben zu f	olgenden Punkten:				
ı	×	Grundlage des Berichts	3				
11		Priorität					
Ш		Keine Erstellung eines	Gutachtens über Neuhe	eit, erfind	erische Tätig	gkeit und gewerbliche Anwendbark	eit
IV		MangeInde Einheitlichk	eit der Erfindung				
V		Begründete Feststellungewerbliche Anwendba				der erfinderische Tätigkeit und der ung dieser Feststellung	r
VI	_	Bestimmte angeführte l	*				
VII	_	Bestimmte Mängel der		_			
VIII	×	Bestimmte Bemerkunge	en zur internationalen A	nmeldun	ig		
Datum der f	Einreicl	nung des Antrags		Datum d	ler Fertigstellu	ng dieses Berichts	
28/09/199	99			11.05.20	000		
		schrift der mit der internationen Behörde:	nalen vorläufigen	Bevollma	ächtigter Bedie	ensteter	DES MILITURES
<u>)</u>	D-802	päisches Patentamt 298 München 49 89 2399 - 0 Tx: 523656		Grundl	ke, H	No. of See Period	
		49 69 2399 - 0 1x. 323636 449 89 2399 - 4465	epina a			Son a	2410 - 2015 3

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER **PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/01537

l. Grundlage des Berichts	l. (	Gru	ndlag	e des	Beri	cht
---------------------------	------	-----	-------	-------	------	-----

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach

		ikel 14 hin vorgeleg ht beigefügt, weil sie			ses Berichts	als "ursprū	nglich eing	ereicht" und	sind ihm
	Bes	schreibung, Seiter	<b>):</b>						
	1-1	0	ursprüngliche Fas	sung					
	Pat	entansprüche, Nr.	:						
	1-1	9	ursprüngliche Fas	sung					
2.	Auf	grund der Änderung	gen sind folgende l	Jnterlagen for	tgefallen:				
		Beschreibung,	Seiten:						
		Ansprüche,	Nr.:						
		Zeichnungen,	Blatt:						
3.			ohne Berücksichtig nden nach Auffass sung hinausgehen	ung der Behö	rde über den				
4.	Etw	vaige zusātzliche Be	emerkungen:						
V.		gründete Feststelli verblichen Anwend							eit und der
1.	Fes	tstellung							
	Neu	uheit (N)	Ja: Nein	Ansprüche : Ansprüche	1-19				
	Erfi	nderische Tätigkeit	•	Ansprüche : Ansprüche	none				
	Gev	werbliche Anwendb	• •	Ansprüche : Ansprüche	1-19				
2.	Unt	erlagen und Erkläru	ınaen						

siehe Beiblatt

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/01537

#### VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

siehe Beiblatt

#### Punkt V:

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

- D1 EP 0 802 241 A
- D2 EP 0 807 669 A
- D3 EP 0 860 476 A
- D4 EP 0 857 764 A

Gegenüber D1 sieht die Annmelderin nach der Beschreibungseinleitung (Seite 2, Zeilen 14, 15) den Unterschied der relativen Farbstärke. Diese Betrachtungsweise scheint jedoch zu eng zu sein, da verfahrensmäßig die gleichen Maßnahmen zur Produktherstellung in D1 angewendet werden. Selbst wenn D1 in den Beispielen punktuell diesen Wert nennt, scheint die Lehre von D1 nicht auf diesen Wert begrenzt zu sein. Somit erscheinen die Gegenstände der Ansprüche nicht mehr neu zu sein. Auch gegenüber D2 sind zumindest, was die Gegenstände der unabhängigen Ansprüche angeht, keine Unterschiede erkennbar.

D3 und D4 sind lediglich zu Ihrer Information genannt, da sie, falls die Priorität zu Recht beansprucht wurde (was hier gegenwärtig nicht überprüft werden kann, da noch kein Prioritätsbeleg vorliegt) nur unter dem Gesichtspunkt einer älteren Anmeldung, somit der Neuheit, in Frage kommen können.

#### Punkt VIII:

Das Kennzeichen von Anspruch 1 beschreibt keine klare Verfahrensmaßnahme, sondern eher das Ergebnis einer nicht angegebenen Verfahrensmaßnahme.

**PCT** 

#### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 32 873-PC	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über di Recherchenberichts (Fo zutreffend, nachstehen	ie Übermittlung des internationalen ormblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit der Punkt 5				
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmeld	edatum	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)				
PCT/EP 99/01537 (Tag/Monat/Jahr) 18/03/1998							
Anmelder							
BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al.							
Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem In	de von der Internationaler ternationalen Büro überm	n Recherchenbehörde ei nittelt.	rstellt und wird dem Anmelder gemäß				
Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt <u>3</u> Blätter.  X Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.							
Grundlage des Berichts							
A. Hinsichtlich der <b>Sprache</b> ist die inte durchgeführt worden, in der sie eine	ernationale Recherche au gereicht wurde, sofern un	f der Grundlage der inte ter diesem Punkt nichts	rnationalen Anmeldung in der Sprache anderes angegeben ist				
Die internationale Recherch Anmeldung (Regel 23.1 b))	ne ist auf der Grundlage e durchgeführt worden.	einer bei der Behörde eir	ngereichten Übersetzung der internationalen				
Recherche auf der Grundlage des	Sequenzprotokolls durcho	geführt worden, das	Aminosäuresequenz ist die internationale				
in der internationalen Anme	•		garaicht worden ist				
zusammen mit der internati			gereion: worden ist.				
bei der Behörde nachträglic		-	ist.				
•	chträglich eingereichte sc	hriftliche Sequenzprotok	oll nicht über den Offenbarungsgehalt der				
· ·	·	-	m schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen,				
2. Bestimmte Ansprüche ha	ben sich als nicht rech	er <b>chierbar erwiesen</b> (si	ehe Feld I).				
3. Mangelnde Einheitlichkei							
Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfi	ndung	•					
wird der vom Anmelder ein							
wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:							
5. Hinsichtlich der <b>Zusammenfassung</b>							
wird der vom Anmelder ein wurde der Wortlaut nach R Anmelder kann der Behörd Recherchenberichts eine S	legel 38.2b) in der in Feld le innerhalb eines Monats	III angegebenen Fassu	ng von der Behörde festgesetzt. Der Absendung dieses internationalen				
6. Folgende Abbildung der <b>Zeichnungen</b>	ist mit der Zusammenfas	ssung zu veröffentlichen:	<u></u>				
. wie vom Anmelder vorgeso	· ·		keine der Abb.				
weil der Anmelder selbst k			-				
weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.							

a. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 C09C1/60 C09C1/58

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

#### B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole ) IPK~6~C09C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Х	EP 0 802 241 A (BAYER AG) 22. Oktober 1997 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument	1-19
X	EP 0 807 669 A (DEGUSSA) 19. November 1997 in der Anmeldung erwähnt siehe Seite 2, Zeile 5 - Zeile 59; Ansprüche 1-3; Tabelle 2 siehe Seite 3, Zeile 2 - Zeile 46 siehe Seite 4, Zeile 19 - Zeile 56	1,3-5,7, 14,15
Ρ,Χ	EP 0 860 476 A (BAYER AG) 26. August 1998  siehe das ganze Dokument/	1,3-7, 10,11

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie
<ul> <li>Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen</li> <li>"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</li> <li>"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</li> <li>"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</li> <li>"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</li> <li>"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach</li> </ul>	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
5. Juli 1999	12/07/1999
'Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Siebel, E



	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	enden Teile Betr. Anspruch Nr.
(ategorie°	Bezeichnung der Veronentiichung, Soweit enfordenich unter Angabe der in Berracht kontin	Dell' Allapidoli 11
, X	EP 0 857 764 A (BAYER AG) 12. August 1998	1,3-7, 12-15, 17,18
	siehe Seite 3, Zeile 10 - Zeile 55; Ansprüche 1-12	17,10
١	EP 0 370 490 A (MITSUBISHI CHEM IND) 30. Mai 1990	1,7
	siehe Seite 2, Zeile 14 - Seite 3, Zeile 2; Ansprüche 1,4; Tabelle 2 	
	-	
	·	

3

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

ational Application No
PCT/EP 99/01537

Patent documer cited in search rep		Publication date	f	Patent family member(s)	Publication date
EP 0802241	Α	22-10-1997	DE	19638042 A	23-10-1997
L. 000EL 11		22 10 1337	AU	1784597 A	23-10-1997
			AU	1784697 A	23-10-1997
			CA	2202705 A	18-10-1997
			CA	2202706 A	18-10-1997
			CN	1167786 A	17-12-1997
			CN	1168396 A	24-12-1997
			DE	19649756 A	23-10-1997
			EP	0802242 A	22-10-1997
			JP	10060302 A	03-03-1998
			JP	10060302 A	03-03-1998
			US	5797988 A	25-08-1998
EP 0807669	Α	19-11-1997	DE	4336548 A	19-05-1994
			DE	4345168 A	03-11-1994
			EP	0598318 A	25-05-1994
			JP	6296851 A	25-10-1994
			US	5480626 A	02-01-1996
EP 0860476	A	26-08-1998	DE	19706899 C	05-11-1998
LI 0000470	- 7	20 00 1330	AU	5467698 A	27-08-1998
			CA	2229972 A	21-08-1998
			CN	1199758 A	25-11-1998
			JP	10237351 A	08-09-1998
			NZ	329787 A	28-01-1999
		10.00.1000		10704042 4	12 00 1000
EP 0857764	Α	12-08-1998	DE	19704943 A	13-08-1998
			AU	5294498 A	13-08-1998
			CA	2229086 A	10-08-1998
			CN	1195006 A	07-10-1998
			JP	10231367 A	02-09-1998
			NZ 	329710 A	29-06-1999 
EP 0370490	A	30-05-1990	JP	2142858 A	31-05-1990
			JP	2674602 B	12-11-1997
			DE	68912728 D	10-03-1994
			DE	68912728 T	25-08-1994
			KŔ	9701930 B	19-02-1997
			US	5547498 A	20-08-1996

### **PCT**

# WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Integnationales Büro

# INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 99/47609

C09C 1/60, 1/58

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

23. September 1999 (23.09.99)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/01537

A1

(22) Internationales Anmeldedatum:

10. März 1999 (10.03.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 11 553.9

18. März 1998 (18.03.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LINDE, Günter [DE/DE]; Deswatinesstrasse 95, D-47800 Krefeld (DE). HEMPELMANN, Uwe [DE/DE]; Kaarster Strasse 124, D-40670 Meerbusch (DE). EITEL, Manfred [DE/DE]; Von-Behring-Strasse 77, D-47906 Kempen (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). (81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

#### Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(54) Title: SOOT GRANULES

(54) Bezeichnung: RUSSGRANULATE

(57) Abstract

The invention relates to soot granules obtained by compacting soot powder in the presence of additives. Despite compaction said granules surprisingly have a greater colouring power than the powders from which they are made.

#### (57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft durch Kompaktierung von Rußpulver in Gegenwart von Hilfsmitteln erhaltene Rußgranulate, die trotz Kompaktierung überraschenderweise eine höhere Farbstärke als die zugrundeliegenden Pulver aufweisen.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
ΑT	Osterreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Мопасо	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	zw	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PΤ	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumānien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		•
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

WO 99/47609 PCT/EP99/01537

### Rußgranulate

Diese Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von kompaktierten Rußgranulaten für verschiedene Einsatzgebiete.

5

10

15

Es ist bekannt, daß färbende Materialien aufgrund ihrer geringen Teilchengröße von 0,01 µm bis 20 µm stark zum Stauben neigen und sich wegen der starken Haftkräfte der Partikel sehr schlecht dosieren lassen. Dem begegnet man dadurch, daß diese Pulver vor ihrer Verwendung granuliert werden. Allerdings geht dabei auch ein Teil der Dispergierbarkeit verloren, da die Granulate üblicherweise zur Verbesserung der Transporteigenschaften durch Bindemittel in ihrer Stabilität verstärkt werden. Dadurch bedingt weisen Granulate aus Pigmenten häufig eine geringere Anfangsfarbstärke auf, bei gegebener Dispergierzeit bleibt also die Farbstärkentwicklung vom Granulat hinter der Einfärbung mit Pulver zurück. Die erwünschten Vorteile der Staubfreiheit und der guten Dosierbarkeit haben daher zu vielen Bemühungen geführt, auch bei Pigmenten zu gut dispergierbaren Granulaten zu kommen.

20

Das gilt insbesondere auch für Ruße, die wegen ihrer geringen Teilchengröße und niedrigen Schüttdichte immer schon als Trockenpulver eine Verdichtung durch "Entgasen" zwischen Vakuumwalzen oder durch "Verperlung" in rotierenden Trommeln erfahren haben. Allerdings entstehen bei der Verdichtung zwischen Walzen keine Granulate und bei einer Trockenverpulverung agglomerieren die Rußflocken zu unterschiedlich großen Kügelchen bis zu einigen Millimetern Durchmesser. Bei der Naß-Verperlung werden die Ruße unter Verwendung von Wasser und eventuell Bindemitteln in Perlmaschinen aufgranuliert und danach getrocknet. Die Herstellung von Rußgranulaten wird beschrieben in Ullmanns "Enzyclopedia of Industrial Chemistry", Fifth Edition, Volume A 5 S. 148.

30

25

US-A-4 946 505 beschreibt die Herstellung von Ruß- und Pigment-Granulaten zur Beton-Einfärbung, die durch Sprühgranulation hergestellt werden. Nachteilig bei der Sprühgranulation ist, daß der Ruß mit Wasser angemaischt werden muß und wegen

der Wasserverdampfung erhebliche Trocknungskosten entstehen. Preß- und Brikettierverfahren werden in US-A-4 946 505 explizit ausgeschlossen.

DE-A-4 336 548 und DE-A-4 345 168 beschreiben Rußgranulate, die unter Zusatz beträchtlicher Wassermengen über eine Ringmatrizenpresse, nachfolgende Rundung und Trocknung hergestellt werden. Dabei werden Granulate mit weniger als 1% Bindemittel erhalten.

5

EP-A-0 370 490 beschreibt Ruß-Schuppen für Druckfarben, die beim Kompaktieren von Ruß unter niedrigem Preßdruck entstehen. Das Material enthält zum Teil noch staubende Anteile. Es wird ausgeführt, daß bei hohem Preßdruck die Dispergierbarkeit leidet.

Aus der EP-A-0 802 241 sind Rußgranulate bekannt geworden, die eine relative Farbstärke bezogen auf das zugrundeliegende Pulver von maximal 100 % aufweisen.

Die bisher vorliegenden Verfahren liefern ein noch nicht zufriedenstellendes Material oder sind wegen der Nachtrocknung energetisch ungünstig.

- Es lag also die Aufgabe vor, Rußgranulate zur Verfügung zu stellen, die mechanische Stabilität mit hoher Farbstärke verbinden sowie ein technisch einfaches, kostengünstiges Verfahren vorzustellen, das derart gut dispergierbare, transportstabile und staubarme Ruß-Granulate liefert.
- Diese Aufgabe wird durch die erfindungsgemäßen Rußgranulate gelöst: Das Rußpulver wird unter Zusatz von Hilfsmitteln so stark kompaktiert und nachfolgend granuliert, daß der Quotient aus pyknometrischer Dichte und Schüttdichte zwischen 3,0 und 10, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8, liegt. Die so erhaltenen Granulate weisen trotz Kompaktierung überraschenderweise eine höhere Farbstärke als die zugrundeliegenden Pulver auf.

Gegenstand der Erfindung ist daher auch ein Verfahren zur Herstellung von Rußgranulaten, in dem Ruße mit Hilfsmitteln kompaktiert werden, in einer bevorzugten Ausführungsform zweifach oder mehrfach, und zu Granulaten zerkleinert werden, wobei die Granulate in der Regel eine mittlere Teilchengröße von 0,3 bis 2 mm, vorzugsweise von 0,5 bis 1,0 mm, aufweisen. Der Quotient aus pyknometrischer Dichte und Schüttdichte des erhaltenen erfindungsgemäßen Granulats liegt zwischen 3,0 und 10, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8.

In den Kompaktierschritten wurden vorzugsweise Preßkräfte zwischen 1 und 100 kN/cm, insbesondere bevorzugt zwischen 10 und 30 kN/cm angewendet. Die Preßkräfte können in allen Kompaktierschritten gleich hoch sein, sind aber vorzugsweise verschieden. Die mit diesen Verdichtungsaggregaten erzielbare Schülpendicke beträgt vorzugsweise 1 bis 5 mm, insbesondere 1 bis 3 mm. Als Verdichtungsaggregate eignen sich zum Kompaktieren auch beispielsweise Schnecken, Walzen, Stempelpressen, Strangpressen mit oder ohne Entlüftungsvorrichtungen.

Die nach den Kompaktierschritten erfolgende Granulation findet vorzugsweise als Siebgranulation statt. Dabei kann der Feinanteil unmittelbar durch Siebung abgetrennt und zurückgeführt werden.

20

30

5

10

15

Es kann auch vorteilhaft sein, den Feinanteil durch einen nachfolgenden Schritt, vorzugsweise durch z.B. Nachrollen auf einem Drehteller oder in einer Drehtrommel aufzugranulieren.

Die Zugabe von flüssigen Hilfsmitteln erhöht bei gegebenen Kompaktierbedingungen den Durchsatz und den Preßdruck so, daß die entstehenden Granulate fester werden.

Messungen der Teilchengrößenverteilung zeigen, daß unter Anwendung von höher werdenden Preßkräften offensichtlich die Strukturen der Ruße zerbrechen. Dementsprechend wird auch beobachtet, daß die erfindungsgemäß hergestellten Granulate

eine höhere Farbstärke aufweisen als die entsprechenden Pulvermischungen. Die Anwendung höherer Drücke und/oder Mehrfachkompaktierung bringt höhere Granulat-Stabilität und erfindungsgemäß überraschenderweise gleichzeitig höhere Farbstärke.

PCT/EP99/01537

- Die Teilchengrößen der Granulate sind nicht erfindungswesentlich, sie betragen in der Regel von 0,3 bis 2 mm, bevorzugt von 0,5 bis 1,0 mm. Der Quotient aus pyknometrischer Dichte und Schüttdichte liegt zwischen 3,0 und 10, bevorzugt zwischen 3,5 und 8.
- Als Hilfsstoff werden ein oder mehrere Bindemittel und/oder Dispergiermittel eingesetzt. Die Hilfsstoffe können fest oder flüssig sein. Vorzugsweise eingesetzt werden flüssige Bindemittel aus der Gruppe Polyole, Polyether, Polyester, Öle, Wasser und wäßrige Lösungen von polymeren Salze oder Melasse. Ebenfalls bevorzugt ist ein Dispergiermittel aus der Gruppe Ligninsulfonate und NaphthalinformaldehydKondensate.
  - Die Gesamtmenge der Hilfsmittel beträgt üblicherweise 0,1 Gew.-% bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 20 Gew.-% und besonders bevorzugt 3 bis 15 Gew.-%.
- Die erhaltenen Granulate können anschließend zur Erhöhung der Stabilität in einem weiteren Schritt mit einer dünnen Schicht eines Materials aus der Gruppe der Wachse, Polyether, Polyester, Polyolefine und Polyvinylalkohole überzogen werden. Es können zusätzlich Konservierungs- und/oder Duftstoffe zugesetzt werden.
- Nach dem erfindungsgemäßen Verfahren werden nicht nur gut fließfähige Granulate erhalten, sondern die relative Farbstärke in Beton ist höher als aufgrund der Menge des eingesetzten Ausgangsmaterials in Pulverform zu erwarten.
- Daher eignen sich die erfindungsgemäßen Rußgranulate besonders zum Einfärben von Substraten, insbesondere von Beton, Asphalt, Kunststoffen sowie Farben und Lacken.

# Methode zur Überprüfung der Dispergierbarkeit von Granulaten in Baustoffen

Die Dispergierbarkeit in Zementmörtel (Farbstärke in Mörtelprismen) der jeweiligen Granulate wird im Vergleich zum Pulver-Standard bestimmt.

5

### Arbeitsgeräte:

Toni-Mischgerät mit Regelelektronik

Mischbehälter (Fa. Toni-Technik)

Farbmeßgerät (Minolta CR 310); Lichtart C; 0° diffus mit Glanz, 8 cm

10

Beleuchtungsöffnung

### Mörtelrezeptur:

1200 g Quarzsand 0,2 - 1 mm

15

600 g Quarzsand 1 - 2 mm

200 g Kalksteinmehl (5 Gew.-% Siebrückstand auf 90 µm-Sieb)

500 g Weißzement (Dyckerhoff)

175 g Wasser (WZ-Wert= 0,35)

6 g Pigment-Granulat

20

25

30

## Durchführung:

Alle Mischkomponenten werden zunächst ohne Wasser in den Mischbehälter vorgelegt und trocken vorgemischt. Anschließend werden Wasser und danach Zement eingegeben und die Mischung 100 Sekunden gerührt.

Diese Mischung wird in eine Stahlpreßform eingebracht und mit ca. 300 bar verpreßt. Direkt nach dem Preßvorgang wird noch in der Form der feuchte Preßling durch Aufsetzen des Farbmeßgerätes farbmetrisch vermessen. Die Messung erfolgt an vier Stellen des Preßlings.

### Auswertung:

Die oben beschriebene Arbeitsweise wird sowohl an dem Granulat-Prüfling als auch an dem dazugehörigen Pulver-Standard als Bezug durchgeführt.

5

10

15

20

25

30

Die Bestimmung der relativen Farbstärke der Proben mit dem Farbstärkekriterium Y erfolgt nach DIN 55986/A.

Die Teilchengröße wurde an Granulaten mit Hilfe eines Malvern® Mastersizer S bestimmt.

# Messung der Teilchengröße mit dem Malvern Mastersizer S

Bei der Dispergierung der untersuchten Substanzen sind zwei verschiedene Verfahren eingesetzt worden, die sich in Bezug auf die Intensität des Dispergierprozesses unterscheiden. Eine hohe Dispergierenergie wird durch den Einsatz einer Ultraschallsonotrode mit 200 W Eingangsleistung erreicht. Verwendet wurde eine Ultraschallsonotrode der Firma B. Braun Diessel Biotec vom Typ ®Labsonic U. In Mischung mit der angegebenen Menge Dispergier- und Zusatzstoffe werden 500 mg des Materials pro 50 ml destilliertem Wasser 2 Minuten mit der Ultraschallsonotrode dispergiert. Verwendet wird eine Einstellung mit 200 W Eingangsleistung, wobei der Impulsregler der Sonotrode auf 0,5 gestellt wird. Man benutzt Gefäße in Becherform mit einem Durchmesser von ca. 45 mm und einer Höhe von 55 mm. Die Sonotrode taucht ca. 2 cm in die Suspension ein, wobei auf möglichst gleichmäßigen Abstand von den Wänden des Gefäßes geachtet wird. Die Suspension wird vollständig in die Meßkammer des Gerätes gegeben und während der Messung mit jeweils 50 % der maximalen Leistung gerührt und gepumpt. Eine Alternative, um geringe Dispergier-Energien zu realisieren, ist die Verwendung der internen Ultraschallkammer des Meßgerätes. Hier werden 50 mg der Untersuchungssubstanz gegebenenfalls auch zusammen mit den angegebenen Zusatzstoffen in die mit destillierten Wasser gefüllte Ultraschallkammer des Gerätes gegeben. Die Intensität der Ultraschalleistung wird

auf 70 % eingestellt; die Dispergierdauer beträgt 2 Minuten; die übrigen Einstellungen gelten unverändert. Angegeben werden der Mittelwert der Volumenverteilung (D[4,3]) und/oder die Perzentilwerte der Volumenverteilung bei 10, 50 und 90 % (D[v,0.1], D[v,0.5] und D[v,0.9]).

5

# Siebanalyse mit Luftstrahlsiebmaschine

Arbeitsgeräte:

250 µm DIN-VA-Sieb (DIN-ISO 3310)

Luftstrahlsiebmaschine; Rhewum Typ LPS 200 MC

10

(4 mm Düse, 18 UpM, 35 m³/h Luft, Siebzeit 1 Minute)

Durchführung:

20 g der zu analysierenden Probe werden auf das Sieb gegeben und

anschließend mit der Siebmaschine abgesiebt.

Nach Beendigung des Siebens wird die Masse des Überkorns be-

15

stimmt und der prozentuale Anteil gegen Einwaage bestimmt.

## Auslausverhalten:

20

30

Das Auslaufverhalten wird gemäß DIN 53 211 bestimmt mit einem Auslaufbecher (100 ml Volumen, 6 mm Auslaufdüse).

Nachfolgend wird die Erfindung mit Beispielen beschrieben, die keine Einschränkung bedeuten.

# 25 <u>Versuchsreihe 1</u>

<sup>®</sup>Flammruß 101 (Handelsprodukt der Degussa) wurde in einem Pflugscharmischer (Fa. Lödige, Paderborn) intensiv mit unterschiedlichen Mengen an Polyethylenglykol <sup>®</sup>PEG 400 (Handelsprodukt der Firma EC-Dormagen) und Ammonium-Ligninsulfonat (Handelsprodukt der Firma Lignotec, Düsseldorf) gemischt.

Diese Mischungen wurden in bis zu 3 Kompaktiervorgängen verdichtet oder auch über eine Vakuumpresse entgast und in einem Schritt kompaktiert mit einem Aggregat Typ CS25 der Firma Bepex, Leingarten.

Das Material wurde über einen Schroter der Firma Frewitt Typ MGI 314 mit einem Sieb von 1,5 mm Maschenweite geschrotet und über ein Sieb mit 323 µm Maschenweite Typ ®Conflux der Firma Siebtechnik, Mühlheim, vom Feinanteil abgetrennt. Die Versuchsbedingungen und die Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle 1 zusammengestellt. Es wurden fließfähige, nicht staubende Granulate von unregelmäßiger Form mit einer erhöhten relativen Farbstärke erhalten.

#### Versuchsreihe 2

Es wurden Mischungen von einem Flammruß 101 wie in Versuchsreihe 1 mit unterschiedlichen Anwendungsmengen von Hilfsmitteln hergestellt, über eine Vakuumpresse entgast und über den Kompaktor CS 25 und eine Vorverdichterschnecke mit
stärker konischem Anteil verdichtet. Die Versuchsbedingungen und die Ergebnisse
sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Bei Verwendung von Hilfsmitteln wurden stabile Granulate mit verbesserter relativer Farbstärke erhalten.

20

Mit zunehmender Menge an Hilfsmitteln nehmen nach dem Preßvorgang sowohl die sich einstellende Preßkraft als auch Schüttdichte, Ausbeute, Stabilität und relative Farbstärke zu (Tabelle 2).

### 25 Vergleichsversuche

Bei sehr niedrigen Preßkräften bzw. ohne Hilfsmittel bleiben die Schüttdichten niedrig wobei die Ausbeute und die relative Farbstärke niedriger sind (Tabelle 2).

Tabelle 1

	Zusatz	Preßkraft	Schüttdichte	rel. Farbstärke	TGV	pykn. Dichte/	Durchsatz
		(kN/cm)	(g/cm <sup>3</sup> )	in Beton**)	D(4,3)	Schüttdichte	(kg/h)
				(%)	шπ		
Pulver			0,18		3,90	10,1	
Granulat 1. Durch- gang	2,5 % PEG/2,5 % ALS	ς.	0,25	93	ŧ	7,1	43
Granulat 2. Durch- gang	2,5 % PEG/2,5 % ALS	18	0,34	117	0,78	5,4	75
Granulat 3. Durch- gang	2,5 % PEG/2,5 % ALS	24	0,40	126	99,0	4,6	92
Granulat 1. Durch- gang	10 % PEG/2,5 % ALS	6	0,33	113	•	5,5	53
Granulat 2. Durch- gang	10 % PEG/2,5 % ALS	25	0,46	125	0,73	4,0	132
Granulat*	10 % PEG/2,5 % ALS	23	0,49	123	0,76	3,7	89
Granulat*	10 % PEG/5 % ALS	23	0,46	123	0,73	4,0	82

\* vorher Entgasung über ®Vacupress \*\*gem

PEG = Polyethylenglykol

ALS = Ammoniumligninsulfonat

<sup>\*\*</sup>gemessen gegen die Pulvermischung

Tabelle 2

	r		-	Γ	Γ	<del></del>
TGV D(4,3) μm	3,90	0,82	0,77	0,74	0,98	3,67
Stabilität (2)			3	2		0
rel. Farb- stärke in Beton (%)	100	137	143	129	116	103
Auslaufzeit (s)		33	34	33	33	läuft nicht
Überkorn (%)		50,2	45,3	42,6	47.0	35,6
pykn. Dichte / Schütt- dichte		4,2	4,8	5,5	6,5	7,3
Schütt- dichte (g/cm <sup>3</sup> )	0,18	0,43	0,38	0,33	0,29	0,25
Durchsatz CS 25 (kg/h)		143	133	84	70	ca. 10**
Preßkraft (1) (kN/cm)		20	91	13	6	3
(%)		15	2	5	3	9
Zusatz Zusammensetzung		10 % PEG/5 % ALS	6,7 % PEG/3,3 % ALS	3,4 % PEG/1,6 % ALS	2 % PEG/1 % ALS	ohne Zusatz
	Pulver	Granulat 1	Granulat 2	Granulat 3	Granulat 4	Vergleichsversuch

\*\* Produkt lief sehr unregelmäßig

(1) = max. Preßkraft (nach Vacupress) bei 1 Durchgang

(2) = sensorischer Test, Werte von 0 - 5 (0 = weich, 5 = hart)

### Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Rußgranulaten, in dem Ruße in Gegenwart von Hilfsmitteln kompaktiert und zu Granulaten zerkleinert werden, wobei die Granulate eine mittlere Teilchengröße von 0,3 bis 2 mm, vorzugsweise von 0,5 bis 1,0 mm, aufweisen, dadurch gekennzeichnet, daß der Quotient aus Dichte und Schüttdichte zwischen 3,0 und 10 mm, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8 mm, liegt.

10

15

5

- 2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kompaktierung zweifach oder mehrfach durchgeführt wird.
- 3. Verfahren nach Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Hilfsmittel ein oder mehrere Bindemittel und/oder Dispergiermittel in einer Gesamtmenge von 0,1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 20 Gew.-%, insbesondere von 3 bis 15 Gew.-% eingesetzt werden.
- Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß ein flüssiges
   Bindemittel aus der Gruppe Polyole, Polyether, Polyester, Öle, Wasser und wäßrige Lösungen von polymeren Salzen oder Melasse eingesetzt wird.
  - Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß ein Dispergiermittel aus der Gruppe Ligninsulfonate und Naphthalinformaldehyd-Kondensate eingesetzt wird.
  - Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß Preßkräfte zwischen 1 und 100 kN/cm, vorzugsweise zwischen 5 und 50 kN/cm, insbesondere zwischen 10 und 30 kN/cm angewendet werden.

25

- 7. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß Verdichtungsaggregate in Form von Schnecken, Walzen, Stempelpressen oder Strangpressen eingesetzt werden.
- 8. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Kompaktierung in mehreren Kompaktierschritten bei jeweils unterschiedlichen Preßkräften erfolgt.
- Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß es sich um zwei
   Kompaktierschritte handelt.
  - 10. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß als Folgeschritt eine Siebung durchgeführt wird.
- 11. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die abgetrennte Siebfraktionen aufgranuliert wird.

20

- 12. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß die erhaltenen Granulate mit einer dünnen Schicht eines Materials aus der Gruppe Wachse, Polyether, Polyolefine und Polyvinylalkohole überzogen werden.
- 13. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich Konservierungsstoffe und/oder Duftstoffe zugesetzt werden.
- 25 14. Kompaktierte Rußgranulate mit einer relativen Farbstärke, bezogen auf das zugrundeliegende Pulver, von größer 100%.
- 15. Rußgranulate gemäß Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine mittlere Teilchengröße von 0,3 bis 2 mm, vorzugsweise von 0,5 bis 1,0 mm, aufweisen, und daß der Quotient aus Dichte und Schüttdichte zwischen 3,0 und 10 mm, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8 mm, liegt.

WO 99/47609 PCT/EP99/01537

- 16. Rußgranulate gemäß Ansprüchen 14 und 15, dadurch gekennzeichnet, daß sie durch zweifach oder mehrfach durchgeführte Kompaktierung erhalten werden.
- 17. Rußgranulate gemäß Ansprüchen 14 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß sie als Hilfsmittel ein oder mehrere Bindemittel und/oder Dispergiermittel in einer Gesamtmenge von 0,1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 20 Gew.-%, insbesondere von 3 bis 15 Gew.-% enthalten.
- 18. Rußgranulate gemäß Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei dem oder den Bindemittel(n) um flüssige Substanzen aus der Gruppe Polyole, Polyether, Polyester, Öle, Wasser und wäßrige Lösungen von polymeren Salzen oder Melasse handelt.
- 15 19. Rußgranulate gemäß Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei dem Dispergiermittel um einen Stoff aus der Gruppe Ligninsulfonate und Naphthalinformaldehyd-Kondensate handelt.

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

intern. al Application No

PCT/EP 99/01537 A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 C09C1/60 C09C1/58 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 CO9C Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. χ EP 0 802 241 A (BAYER AG) 22 October 1997 1 - 19cited in the application see the whole document X EP 0 807 669 A (DEGUSSA) 19 November 1997 1,3-5,7,cited in the application 14.15 see page 2, line 5 - line 59; claims 1-3; table 2 see page 3, line 2 - line 46 see page 4, line 19 - line 56 P,X EP 0 860 476 A (BAYER AG) 26 August 1998 1,3-7,10,11 see the whole document -/--Further documents are listed in the continuation of box C. X Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular retevance cited to understand the principle or theory underlying the invention "E" earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention filing date cannot be considered novel or cannot be considered to "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention citation or other special reason (as specified) cannot be considered to involve an inventive step when the "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or document is combined with one or more other, such documents, such combination being obvious to a person skilled document published prior to the international filing date but in the art later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 5 July 1999 12/07/1999 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk

Siebel, E

Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern I al Application No PCT/EP 99/01537

		PCT/EP 99/01537
_	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
egory '	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Χ	EP 0 857 764 A (BAYER AG) 12 August 1998	1,3-7, 12-15,
	see page 3, line 10 - line 55; claims 1-12	17,18
	EP 0 370 490 A (MITSUBISHI CHEM IND) 30 May 1990	1,7
	see page 2, line 14 - page 3, line 2; claims 1,4; table 2	
	<del></del>	
	•	
	·	

### INTERNA FIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Interni al Application No PCT/EP 99/01537

	t document search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication
	·		<del></del>	<u></u>			date
EP 08	302241	Α	22-10-1997	DE	19638042		23-10-1997
				AU	1784597		23-10-1997
				AU	1784697		23-10-1997
				CA	2202705	Α	18-10-1997
				CA	2202706		18-10-1997
				CN	1167786	Α	17-12-1997
				CN	1168396	Α	24-12-1997
				DE	19649756	Α	23-10-1997
				EP	0802242		22-10-1997
				JP	10060302		03-03-1998
				JP	10060300		03-03-1998
				ÜS	5797988		25-08-1998
					·	/·	
EP 08	07669	Α	19-11-1997	DE	4336548	Α	19-05-1994
				DE	4345168		03-11-1994
				EP	0598318		25-05-1994
				JP	6296851		25-10-1994
				ÜS	5480626		02-01-1996
		- <del>-</del>					
EP 08	60476	Α	26-08-1998	DE	19706899	С	05-11-1998
				AU	5467698	Α	27-08-1998
				CA	2229972	Α	21-08-1998
				CN	1199758	Α	25-11-1998
				JP	10237351		08-09-1998
				NZ	329787		28-01-1999
EP 08!	57764	Α	12-08-1998	DE	19704943		13-08-1998
				AU	5294498		13-08-1998
				CA	2229086		10-08-1998
				CN	1195006	Α	07-10-1998
				JP	10231367	Α	02-09-1998
				NZ	329710	Α	29-06-1999
	70400						
EP 03	/0490	Α	30-05-1990	JP	2142858		31-05-1990
				JP	2674602		12-11-1997
				DE	68912728		10-03-1994
				DE	68912728		25-08-1994
				KR	9701930	В	19-02-1997
				US	5547498		20-08-1996